

## 液体ならびに非晶質金属の 線コンプトン散乱

著者	本多 俊久
号	779
発行年	1979
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/9515">http://hdl.handle.net/10097/9515</a>

氏 名	ほん だ とし ひさ 本 多 俊 久
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和 55 年 3 月 25 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 1 項
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 金属材料工学専攻
学 位 論 文 題 名	液体ならびに非晶質金属の $\gamma$ 線コンプトン散乱
指 導 教 官	東北大学教授 鈴木 謙爾
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 鈴木 謙爾    東北大学教授 井垣 謙三 東北大学教授 平林 真    東北大学教授 平野 賢一

## 論 文 内 容 要 旨

### 第 1 章 序 論

非晶質金属は結晶金属に比べ、しばしば優れた性質を示すので、最近活発な研究が行なわれている。非晶質金属を有用な機能材料として開発するためには非晶質ならびにその元である液体状態に関する知識が非常に重要である。

コンプトン効果を利用して物質中の電子の運動量分布を求める試みは 1930 年代に始められたが、特に 1970 年以降  $\gamma$  線を放出する放射性同位元素と分解能が向上した半導体検出器 (SSD) を用いる方法が可能になり、測定精度および効率が飛躍的に向上した。このため物質中の電子状態を直接測定する有効な手段としてコンプトン散乱は注目されるようになった。本研究ではコンプトン散乱実験が陽電子消滅実験と異なり、試料の状態や格子欠陥などに左右されずに電子の運動量分布を与えることができることに着目し、液体ならびに非晶質金属にコンプトン散乱を初めて応用した。

本研究の目的は  $1\text{ Ci-}^{241}\text{Am}$  (59.54 KeV) からの  $\gamma$  線と Ge-SSD を用いる液体ならびに非晶質金属試料に対するコンプトン散乱実験の開発およびこれより得られるデータの解析方法の確立をはかると共に、液体ならびの非晶質金属の電子状態に関する新しい知見を得ることにある。

### 第 2 章 実験原理と測定装置

本章では、コンプトン散乱実験により求められるコンプトンプロフィール  $J(q)$  と電子の運動量分布の間の関係を概説し、本研究において液体金属測定用に考案、製作された装置の構造および性能について記述した。

図1に測定装置全体のブロック図を示す。測定系は試料および電気炉を含む真空容器、入射および散乱  $\gamma$  線をコリメートする鉛スリット、散乱  $\gamma$  線のエネルギー分析を行う SSD およびエレクトロニクスより構成されている。

### 第3章 データ解析の方法

本章では測定された生データからコンプトンプロフィールを得るまでの過程で必要なデータ補正の方法について詳述した。特に、 $\gamma$  線の試料内部での多重散乱効果の補正はモンテカルロ法に基づく計算機シミュレーションによって行なわれたが、その際  $\gamma$  線光路の鉛スリットによる幾何学的な制約を厳密に取り入れたシミュレーションを行うことにより、従来行なわれていた方法を改善することができた。また、分解能関数のデコンボリューションにはフーリエ変換法に基づく generalized least squares 法を採用し、デコンボリューションの最適化条件をモデル計算によって求めた。

### 第4章 アルカリ金属のコンプトン散乱

典型的な金属の固液両相における電子状態を調べる目的で Li および Na の液体 (融点 +60℃) と結晶状態におけるコンプトンプロフィールの測定が行なわれた。結晶状態におけるコンプトンプロフィールは今までに報告されている結果と一致した。すなわち、Li および Na の伝導電子の記述には自由電子模型では不充分であり、多体相関を取り入れた理論計算が最も良い。液体状態のコンプトンプロフィールも自由電子模型では不充分であることが見出された。例として液体 Li のコンプトンプロフィールを図2に示す。さらに、陽電子消滅実験では検出されなかった固液両相における電子状態の差異の存在が確認され (図3)、この変化は主として密度変化によって説明できることが示された。以上の事実から、Li および Na の電子状態には液体状態においても伝導電子の多体相関が重要は寄与をしていることが見い出された。

### 第5章 アルミニウムのコンプトン散乱

本章では第4章で見出された固液両相における電子状態の差異をより詳細に調べる目的で、Al の室温から 900℃ の温度範囲にわたりコンプトンプロフィールが温度の関数として測定された。結晶および液体 Al のコンプトンプロフィールは自由電子模型では十分に再現されないこと、結晶 Al のコンプトンプロフィールは  $LCAO$  バンド計算と良く一致することおよび液体 Al のコンプトンプロフィールはグリーン関数による計算結果とも一致しないことが見い出された。種々の温度で測定されたコンプトンプロフィールをフーリエ変換して実験的にフェルミ運動量を決定した。Al のフェルミ運動量の温度依存性は密度変化に良く対応していることが確かめられた (図4)。

## 第6章 ゲルマニウムおよびセレンのコンプトン散乱

Geは融解によって原子構造の変化および半導体→金属転移を起す物質である。一方、Seは液体状態においても分子内原子構造はほとんど変えずに不規則鎖状（disordered chain）構造をとることが知られている半導体である。本章では結晶および液体（970℃）Geのコンプトンプロフィールと液体（277℃）、非晶質（300℃からの水焼入れ）および三方晶Seのコンプトンプロフィールの測定が行なわれた。

液体Geの諸物性値は1原子当り4個の自由電子をもつことを示唆しているが、本研究で得られたコンプトンプロフィールはこのような自由電子模型では理解できない。融解にともなう半導体→金属転移は $SP^3$ 共有結合を作るP電子の一部がS電子的振舞いをすることによって生起すると考えることにより説明された。

短範囲構造が互いに極めて類似している液体および非晶質Seのコンプトンプロフィールの間にはほとんど差異がなく、これら両者と三方晶Seとの間には差異が認められた。この差異は液体および非晶質Seでは分子間路離が増加するため分子間結合にあずかっているP電子が非局在化することによって由来していると解釈された。

## 第7章 Ni-PおよびCo-P非晶質合金のコンプトン散乱

本章ではNi-18.9 at % P電着ならびに液体急冷非晶質合金ならびにCo-18.25 at % P電着非晶質合金のコンプトンプロフィールが測定され、それらの相互比較に基づいて電子状態の解明が試みられた。

Ni-PおよびCo-P非晶質合金の合金化にともなうコンプトンプロフィールの変化は主としてPの外殻電子の一部がNiあるいはCoの3dバンドへ移行（電荷移動）するとして説明されることがわかった。この結果は磁氣的測定の結果を裏付けている。

## 第8章 総括

結論として本論文を要約し、第3章から第7章までの結果を総括した。

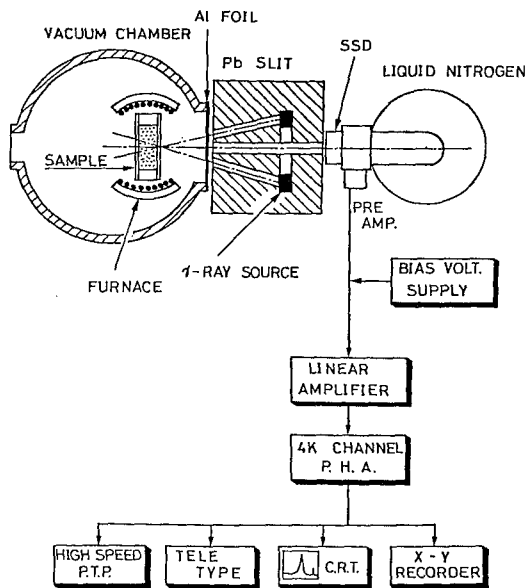


図1：本研究で用いたコンプトン散乱測定装置

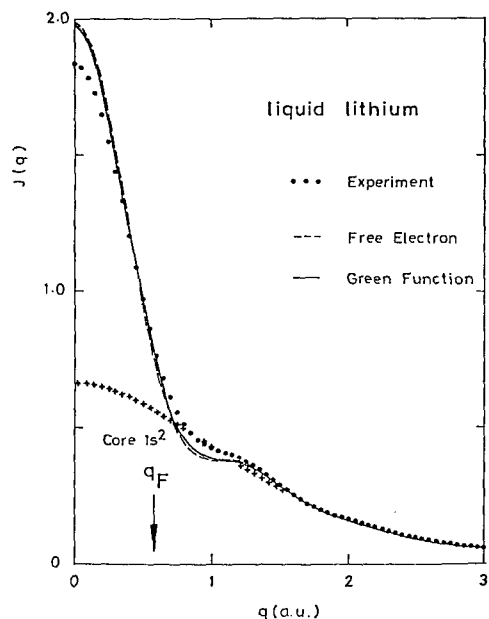


図2：液体Liのコンプトンプロファイル。黒丸は実験値、破線は自由電子模型、実線はグリーン関数による理論曲線を示す。

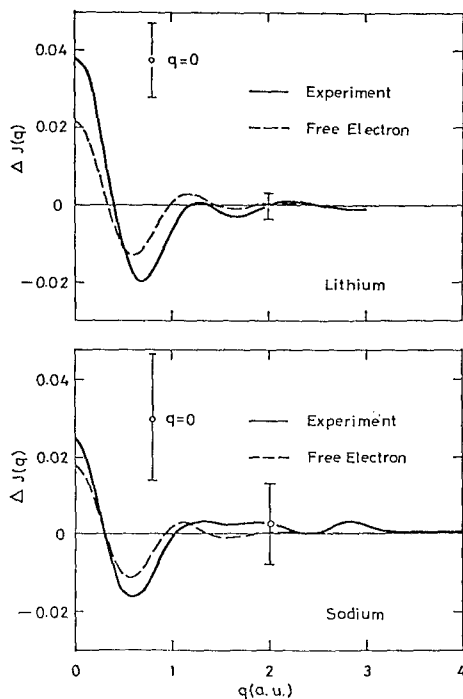


図3：液体および結晶のコンプトンプロファイルの差： $\Delta J(q) = J_{\text{liquid}}(q) - J_{\text{solid}}(q)$ 。実線は実験、破線は自由電子模型を示す。

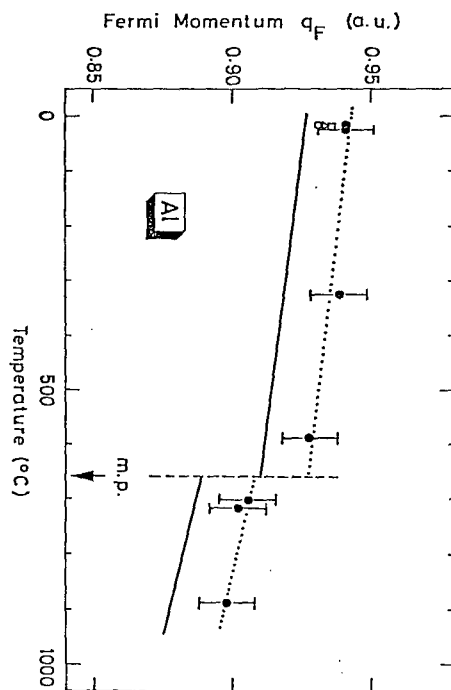


図4：アルミニウムのフェルミ運動量の温度依存性。黒丸は実験値、実線は自由電子模型を示す。

## 審 査 結 果 の 要 旨

最近、優れた機能を有する非晶質金属材料を開発するための基礎資料として、液体あるいは非晶質状態における金属の電子状態に関する知識の蓄積が強く望まれている。著者は $^{241}\text{Am}$ から放出される59.54 keVの $\gamma$ 線とGe検出器を用いてコンプトン散乱を測定し、液体ならびに非晶質金属の電子状態を明らかにすることを試みた。本論文はこれらの研究成果をとりまとめたもので、全編8章より成る。

第1章は序論であり、本研究の目的と意義を述べたものである。

第2章は、 $\gamma$ 線コンプトン散乱実験の原理、方法および液体あるいは非晶質金属試料を測定するために工夫して製作した測定装置の構造および性能について述べたものである。

第3章では、液体金属試料について、測定された生データから最終的なコンプトンプロフィールを導き出すために開発された種々の補正の手順およびそれに基づくデータ解析の方法が述べられている。

第4章では、LiおよびNaの液体および結晶状態におけるコンプトンプロフィールの測定結果について述べている。これまで陽電子消滅実験によって検出されなかったアルカリ金属の固液両相における電子状態の変化を実験的に見出し、これが密度変化に主として由来していることを明らかにした。

第5章は、Alの固液両相におけるコンプトンプロフィールの温度変化を測定した結果を述べたもので、フェルミ運動量の温度依存性についての知見を得ている。

第6章は、固液両相におけるGeおよびSeのコンプトンプロフィールについて述べたもので、融解にともなうGeの半導体→金属転移は化学結合にあずかるp電子の一部がs電子的振無いをするようになるためであると結論された。また、液体Seでは分子間結合にあずかっているp電子の非局在化が生じていることが確かめられた。

第7章では、Ni-18.9at%PおよびCo-18.25at%P非晶質合金のコンプトンプロフィールが測定され、Pの価電子の一部がNiあるいはCoの3d軌道へ移動していることが示され、従来の磁気測定からの推定が裏付けられた。

第8章は総括である。

以上要するに本論文は $\gamma$ 線コンプトン散乱実験を液体ならびに非晶質金属に初めて応用し、固液両相における電子状態の差異や非晶質合金における化学結合の特徴などを明らかにし、 $\gamma$ 線コンプトン散乱実験が複雑な材料の研究にとって有効な手段となり得ることを示したもので、金属工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。